

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

THIS PAGE BLANK (USPTO)

#D
CT/JP00/05791

14.09.00

日 本 国 特 許 庁

PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

REC'D 03 OCT 2000

WIPO

PCT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日

Date of Application:

1999年 8月27日

出 願 番 号

Application Number:

平成11年特許願第242002号

出 願 人

Applicant (s):

旭化成工業株式会社

JP00/05791

EJU

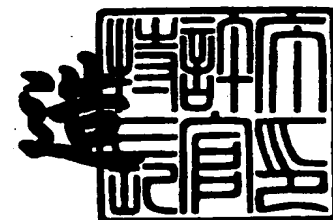
PRIORITY
DOCUMENT

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2000年 9月 8日

特 許 庁 長 官
Commissioner,
Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2000-3072385

【書類名】 特許願
【整理番号】 X11-00688
【提出日】 平成11年 8月27日
【あて先】 特許庁長官 殿
【国際特許分類】 C25B 9/00 311
【発明者】

【住所又は居所】 宮崎県延岡市旭町6丁目4100番地 旭化成工業株式会社内

【氏名】 野秋 康秀

【発明者】

【住所又は居所】 宮崎県延岡市旭町6丁目4100番地 旭化成工業株式会社内

【氏名】 岡本 三郎

【特許出願人】

【識別番号】 000000033

【氏名又は名称】 旭化成工業株式会社

【代表者】 山本 一元

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 011187

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 塩化アルカリ単位電解セル

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 陽イオン交換膜を用いて塩化アルカリ水溶液を電解する単位電解セルにおいて、単位電解セル上部の非通電部に設置されている気液分離室内が、垂直に立てられた衝立状板と該衝立状板に固定された多孔質体気泡消去板より 2 つの通路に仕切られており、該多孔質体気泡消去板の一方の端は該衝立状板の上端または衝立状板の上部に固定されていることを特徴とする単位電解セル。

【発明の詳細な説明】

— 【 0 0 0 1 】 —

【発明の属する技術分野】

本発明は、気液分離室を有するフィルタープレス型単位電解セルを用いてアルカリ金属塩化物水溶液を電解し、塩素とアルカリ金属水酸化物を生産するためのイオン交換膜法塩化アルカリの単位電解セルに関する。

【 0 0 0 2 】

【従来の技術】

高電流効率で高純度のアルカリ金属水酸化物を生産するためのイオン交換膜法塩化アルカリ単位電解セルについては、従来より多数提案されている。例えば特開昭 6 1 - 1 9 7 8 9 号公報、特開昭 6 3 - 1 1 6 8 6 号公報では、上部にガス及び電解液を抜き出さずに下向きに抜き出すように工夫しているが、液とガスが混相で払い出されることがあり、単位電解セル内での振動発生を防止することはできなかった。

【 0 0 0 3 】

特開昭 6 1 - 1 9 7 8 9 号公報、特開昭 6 3 - 1 1 6 8 6 号公報では、上部にガス及び電解液を抜き出さずに下向きに抜き出すように工夫しているが、液とガスが混相で払い出されることがあり、単位電解セル内での振動発生を防止することはできなかった。

実開昭 5 9 - 1 5 3 3 7 6 号公報ではこの対策として波消し板を提案しているが、この方法だけでは未だ十分な波消し効果が得られず、単位電解セル内の圧力

変動の基づく振動を完全に防止することはできなかった。

【0004】

特開平 4-289184 号公報、特開平 8-100286 号公報は気液分離室にある程度十分な大きさを持たせ、且つ下向きや水平に気液分離した状態で抜き出す工夫はしているが、 50 A/dm^2 以上の高電流密度においてはまだ振動が発生することもあった。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】

この発明は、電解液を単位電解セル出口ノズルから払い出す際に、 50 A/dm^2 以上の高電流密度においても、気泡や液、ガスが混相で払い出されずに、気液が分離した状態のまま払い出されるようにすることにより、単位電解セル内の振動を防止し、イオン交換膜の破損等が起きない単位電解セルを提供することにある。

【0006】

【課題を解決するための手段】

本発明は、陽イオン交換膜を用いて塩化アルカリ水溶液を電解する電解槽の単位電解セルに関する。

一般に、安定した塩化アルカリの電解を行ない、塩素、水素、苛性ソーダを安価に生産するために要求される事項としては、設備コストが安価であること、低電圧で電解できること、セル内の振動等によりイオン交換膜が破損しないこと、セル内の電解液濃度の分布が均一でイオン交換膜の電圧や電流効率が長期間安定していること等があげられる。

【0007】

このような要求に応じて、近年のイオン交換膜法塩化アルカリ電解における性能の向上はめざましいものがある。特にイオン交換膜、電極、単位電解セルの性能向上は著しく、電力原単位はイオン交換膜法の出現当初の 40 A/dm^2 で 3000 kW/NaOH-t から、近年では 2000 kW/NaOH-t 以下になろうとしている。しかし、設備大型化や省力化、高効率化の要望は最近さらに大きくなってきており、単位電解セルにおいても電解電流密度も当初の 30 A/d

m^2 から、現在では 50 A/dm^2 以上で電解できるようにすることが求められている。

【0008】

本発明者等はこのような状況に鑑み、単位電解セルを改良するに当たり、 50 A/dm^2 以上のような高電流密度で安定した電解ができることを目標に検討を進めてきた。このような高電流密度で電解するに当たり必要なことは、単位電解セル内の電解液濃度分布が均一であること、単位電解セル内に気泡やガスの滞留部分の無いこと、電解液や気泡・ガスを排出ノズルから払い出す際に、これらが混相となり単位電解セル内に圧力変動が生じて振動を発生させないことである。

【0009】

高電流密度においては、ガスの発生量が増加するため、単位電解セル内の圧力変動による振動が生じやすく、長期的にはイオン交換膜の破損を引き起こす場合があった。

本発明は、このような単位電解セル内の圧力変動を防止するものである。

すなわち本発明は、陽イオン交換膜を用いて塩化アルカリ水溶液を電解する単位電解セルにおいて、単位電解セル上部の非通電部に設置されている気液分離室内が、垂直に立てられた衝立状板と該衝立状板に固定された多孔質体気泡消去板より2つの通路に仕切られており、該多孔質体気泡消去板の一方の端は該衝立状板の上端または衝立板の上部に固定されることにより、単位電解セルに関する。

【0010】

以下に図面を参照して本発明を説明するが、本発明は図面のみに限定されるものではない。

図1～図3は、いずれも本発明の例を示す気液分離室の概念図（断面図）である。

図4は本発明の他の例を示す単極式電解セルの気液分離室の概念図（断面図）である。

【0011】

図5および図6は、比較のための、本発明とは異なる気液分離室の概念図（断

面図)である。

図7は本発明の例を示す複極式単位電解セルの正面図、図8は図7のA-A'間の断面図である。

図9は本発明のセルを用いた複極式電解槽の例を示す組立図である。

図1において、気液分離室は隔壁1とL型板4により構成される。このようにして形成される気液分離室の場合、その大きさは製作のしやすさや製作コスト面から、断面積は通常 10 cm^2 以上 100 cm^2 以下である。

【0012】

この気液分離室は、垂直に立てられた衝立状板（以下、衝立ともいう）3とこの衝立状板に固定された多孔質体気泡消去板（以下、多孔板ともいう）2により内部が2つに仕切られており、衝立状板3と隔壁1により通路Bが形成され、衝立状板3とL型板4により通路Aが形成されている。電解により生成したガス及び電解液混合物は通路Bを通過し、電解液とガスに気液分離された状態で通路Aを通過し、排出される。

【0013】

気液分離室には、通路B側に設けられた孔5からガス、電解液、気泡が流入する。流入した混合物は通路Bを通り、衝立上端に上方へ向かって垂直に設けられた多孔質体気泡消去板2を通過することにより、気泡は完全にガスと電解液に分離され、通路A側に達する。電解液は衝立3を伝わり通路Aの底に流れ落ちる。通路Aの底に流れ落ちた電解液は、ガスと電解液とに分離した状態で図7の排出ノズル8から排出される。気泡をほとんど含まない電解液とガスとが排出されるので、 50 A/dm^2 以上の高電流密度でも排出ノズルでの圧力損失の変化にもなうセル内圧力変動（振動）を全くなくすることができる。

【0014】

図2は、通路BをL型板4と衝立状板3により形成し、通路Aを隔壁1と衝立状板3により形成して、孔5を通路B側に設けた例である。また、図3は、多孔板2を衝立状板3上端から水平に設けた例である。

衝立状板3は気泡を含む液と、気泡を消去した液を隔てる役割も有するので、その高さHは上端が通路A側の液面より高くなるように製作する必要がある。し

たがって、衝立の高さ H は10 mm以上は必要であり、最大でも気液分離室高さ H の90%までの範囲が好ましい。衝立高さ H' が H の90%を超えると、通路Aへ流入する電解液の圧力損失が大きくなり、通電部にガス溜まりを形成するなどの不都合が生じる。

【0015】

通路Bの間隔としては、図1であれば衝立3と隔壁1の間隔 W とし、図2であればL型板4と衝立3との間隔 W' とすると、 W 又は W' の大きさは2 mm~20 mmの範囲で有れば、圧力損失も少ないので好ましい。20 mmを超えると通路Aの幅が小さくなり、圧力損失が高まるために、気液分離している液とガスが再度混合して、排出ノズルから払い出す際に圧力変動が大きくなり、振動発生を引き起こす場合がある。2 mm未満ではガスや液等が通過する際に圧力損失が大きくなり、通電部にガス溜まりを形成してイオン交換膜に悪影響を与える場合がある。

【0016】

気泡を消去するための多孔質体気泡消去板2としては、金属を用いる場合はエクspandedメタルや、丸型や角形等の孔を打ち抜きしたパンチドメタル、金網、ワイヤーメッシュ、発泡金属等が使用できる。その他にも塩素や苛性ソーダに対する耐久性のある素材であれば、プラスチックやセラミック製で同様な形状のものでも可。多孔板2の開孔率は、10%~80%の範囲で使用するが、圧力損失や気泡消去の面から、最も好ましくは30%~70%の範囲である。多孔板2の厚みは、0.1 mm~5 mmの範囲であれば、圧力損失も少なく気泡消去効果は十分得られる。

【0017】

多孔板2を取り付ける場合は、図1及び図2の如く衝立の上端から垂直に設置する方法、あるいは図3に示すように衝立の上端から水平に取り付ける方法、あるいは斜めに取り付ける方法がある。

いずれの方法においても、多孔板2の一方の端は衝立状板3上で且つ通路Aの気相部分に相当する位置に固定されていることが必要である。多孔板2のいずれか一方の端が衝立状板3上に取り付けられていない場合、通路Bを通過した気泡

を含むガスと電解液の混合物が多孔板2を通過することなく通路Aに流れ込む部分が生じ、波消し効果が薄れて排出ノズルでの圧力変動が起こる原因となる。また一方の端が衝立状板3上の通路Aの気相部分でなく液相部である場合には、多孔板2上に液相と気泡が残り、やはり波消し効果が薄れて排出ノズルでの圧力変動が起こる原因となる。

【0018】

このため多孔板2の固定位置は重要なポイントとなる。例えば衝立から垂直方向に延長して多孔板2を設ける場合、多孔板2の一方の端を衝立状板3の上端付近に固定し、多孔板2の高さは気液分離室高さHと衝立高さH'の差と同じか、それよりも小さく5mmより大きな範囲であれば気泡消去効果は得られる。更に20mmより大きく、HとH'の差と同じかそれより小さい範囲が、高電流密度でも効果的に気泡を消去できるので更に好ましい。衝立の上端から水平に取り付ける場合は、多孔板2の長さは通路Aの幅と等しくすることが好ましい。通路Aの幅より短いと、隙間から気泡が流れ落ちて有効に気泡を消去できない場合がある。

【0019】

また、多孔板2は、衝立上端から斜めに取り付けても良いし、あるいは衝立上端より低い位置から斜めあるいは水平に取り付けても良い。衝立上端から斜めに取り付ける場合は、多孔板の位置が気液分離室の底より20mm以上上方であることが好ましい。20mm未満であると通路Aの液面より低くなり、あるいは気泡が消去されずにガスの流れにより排出ノズルまで運ばれて、圧力変動が生じる場合がある。衝立上端より低い位置から水平あるいは斜めに取り付ける場合においても同様の理由により、多孔板2の最も下の端が気液分離室の底よりも20mm以上になるように取り付けることが望ましい。

【0020】

気液分離室にガス、電解液、気泡が流入する孔5の形状は、例えば図1であればW以下、図2であればW'以下の幅を有する開口部を持つ孔であればどのような形状でも良い。孔5の開口率は、単位電解セル正面から見た通電部横方向の長さとしてWあるいはW'により形成される面積に対して10%~80%の範囲が好

ましい。10%未満ではガスや液等が孔を通過する際に圧力損失が大きくなり、通電部にガス溜まりを形成してイオン交換膜に悪影響を与える場合がある。80%より大きすぎると、気液分離室の強度が弱くなるため、単位電解セルにガスケットとイオン交換膜を装着して締め付ける際に、変形する等の問題点が生じる場合がある。

【0021】

このような気泡消去できる構造を有する気液分離室は、陽極側及び陰極側いずれにも取り付けることができる。特に陽極側は、気泡の影響が大きいので陽極側に取り付けると効果的である。

多孔板2を取り付ける場合であっても、図5および図6に示すように、気液分離室の底に取り付けた場合は殆ど効果が無い。すなわち電解液中に多孔板2が取り付けられた場合は効果がなく、本発明のように通路A側の気相部分で電解液、気泡、ガスの混合相が多孔板を通過すると、気泡がはじけて電解液とガスに分離し、効果があるものと考えられる。

【0022】

本発明を単極式単位電解セルの気液分離室に適用した例を図4に示す。また、本発明の気液分離室を取り付けた複極式単位電解セルの正面図を図7に、図7のA-A'間の断面図を図8に示した。

以上述べたように、本発明の単位電解セルは、気液分離室に衝立状板と多孔板を取り付けた簡単な構造であるため、気液分離室を有する複極式電解セルや単極式電解セルのいずれにも適用可能である。また、有効に気泡を消去できるため、 50 A/dm^2 以上の高電流密度でも、電解液やガスをセル外に排出する際に圧力変動による振動も発生せず安定した電解ができ、イオン交換膜への悪影響が全く生じない。

【0023】

【発明の実施の形態】

次に本発明の実施例を示すが、本発明はこの実施例のみに限定されるものではない。

【0024】

【実施例 1】

図 7 と同様の正面形状を持ち、図 8 と同様の断面形状を持つ複極式単位電解セル枠を 8 個直列に並べ、その両端に図 2 と同様の気液分離室を有する陽極単位セル及び陰極単位セルを配して電流リード板を取り付け、図 9 の電解槽を組み立てた。

単位電解セルは、横幅が 2400 mm、高さが 1280 mm で、気液分離室の断面積は陽極側 27 cm^2 、陰極側の気液分離室の断面積は 15 cm^2 で、陽極側気液分離室のみ図 2 と同様な構造とした。すなわち、陽極側気液分離室の通路 B の幅 W' を 5 mm、高さ H は 50 mm、板厚み 1 mm のチタン製衝立を設け、その上端から垂直に気液分離室上端までの高さで、開口率 59%、厚み 1 mm のチタン製エキスパンデッドメタルを取り付けた。

【0025】

気液分離室の孔は、幅 5 mm、長さ 22 mm の楕円型のものを 37.5 mm ピッチのものとした。

陽極は、エキスパンデッドメッシュ加工したチタン板の表面に、ルテニウム、イリジウム、チタンを成分とする酸化物を被覆することにより製作し、陰極はエキスパンデッドメッシュ加工したニッケル板の表面に酸化ニッケルを主成分としたコーティングプラズマ溶射して製作したものをを用いた。

【0026】

このような電解セルに、陽イオン交換膜 ACIPLEX (登録商標、F4202 を、ガスケットを介してはさみ、電解槽を組み立てた。この電解槽の陽極室側に、陽極液として出口塩水濃度が 200 g/リットル となるように 300 g/リットル の塩水を供給し、陰極室側には出口苛性ソーダ濃度が 32 重量% なるように希薄苛性ソーダを供給し、電解温度 90°C 、電解時の絶対圧力で 0.14 MPa スカル、電流密度 $30 \text{ A/dm}^2 \sim 60 \text{ A/dm}^2$ の範囲で 10 日間電解した。

電解中の電解セル内の振動を測定した結果を表 1 に示す。この結果から、電解セル内の振動は 60 A/dm^2 でも水柱で 5 cm 以下であった。

【0027】

【実施例 2】

陽極側気液分離室の構造として、チタン製衝立上端から水平に通路Aと同一幅の多孔板を取り付けた図3の構造とした以外は、実施例1と同様の電解槽を組み立て、全く同様な条件で電解をおこなった。

電解中の電解セル内の振動を測定した結果を表1に示す。この結果から、電解セル内の振動は 60 A/dm^2 でも水柱で5cm以下であった。

【0028】

【比較例】

陽極側気液分離室の構造としては、衝立はなく、気液分離室底中央にガス、気泡、電解液の混相が通過する直径10mmの孔を20mmピッチで設け、実施例1と同様な多孔板を気液分離室底から2mm上方に取り付け図6に示すような気液分離室とした単位電解セルを準備した。この単位電解セルを用いて、実施例1と全く同一の電解槽を組立て、同一条件で電解した。

電解中の電解セル内の振動を測定した結果を表1に示す。その結果、電解セル内の振動は 50 A/dm^2 では水柱で15cm、 60 A/dm^2 では32cmに達した。

【0029】

【表1】

		電流密度 (A/dm^2)			
		30	40	50	60
振 動 cm-H ₂ O	実施例1	5以下	5以下	5以下	5以下
	実施例2	5以下	5以下	5以下	5以下
	比較例	5以下	5	15	32

【0030】

【発明の効果】

本発明によれば、電解液を単位電解セル出口ノズルから払い出す際に、 50 A/dm^2 以上の高電流密度においても気泡、液、およびガスが混相で払い出されずに、気液が分離した状態のまま払い出される。そのため、単位電解セル内の振動がなく、イオン交換膜の破損等が起きない。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

本発明の実施態様の一例を示す気液分離室の概念図（断面図）である。

【図 2】

本発明の実施態様の一例を示す気液分離室の概念図（断面図）である。

【図 3】

本発明の実施態様の一例を示す気液分離室の概念図（断面図）である。

【図 4】

本発明の実施態様の一例を示す単極式電解セルの気液分離室の概念図（断面図）である。

【図 5】

本発明とは異なる気液分離室の断面図である。

【図 6】

本発明とは異なる気液分離室の断面図である。

【図 7】

本発明の気液分離室を取り付けた複極式電解セルの例を示す正面図である。

【図 8】

図 7 の A-A' 間の断面図である。

【図 9】

本発明のセルを用いた複極式電解槽の例を示す、一部を切り欠いた組立図である。

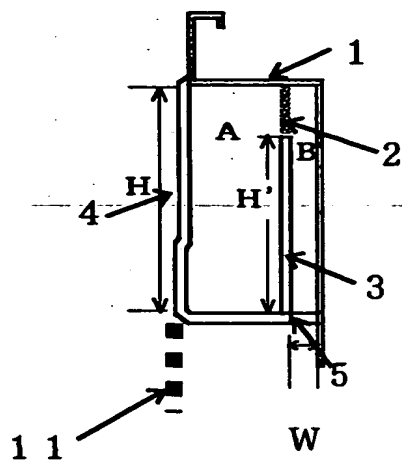
【符号の説明】

- 1 隔壁
- 2 多孔質体気泡消去板

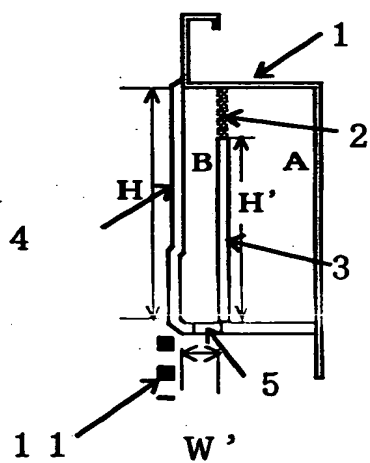
- 3 衝立状板
- 4 L型板
- 5 孔
- 6 気液分離室フレーム
- 7 気液分離室
- 8 排出ノズル
- 9 リブ
- 10 入り口ノズル
- 11 電極
- 12 フレーム
- 13 陽極
- 14 陰極
- 15 リード板
- 16 陰極側ガスケット
- 17 イオン交換膜
- 18 陽極側ガスケット
- 19 複極式単位電解セル
- 20 締結体

【書類名】 図面

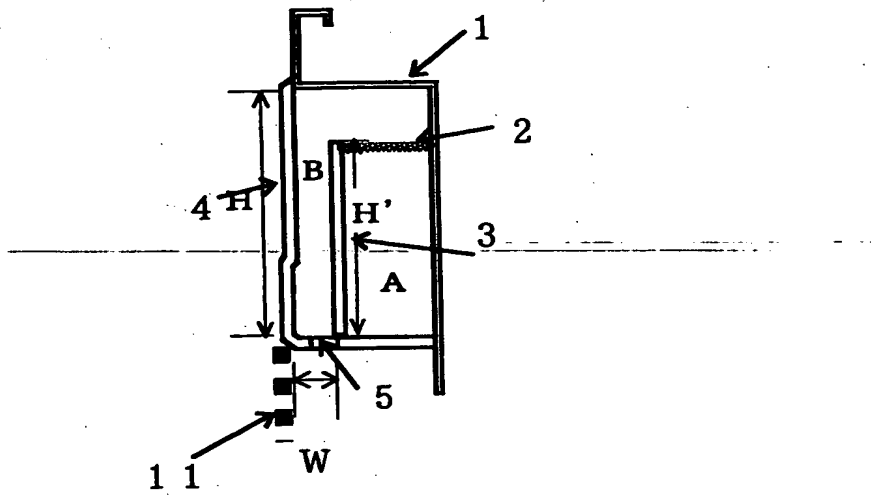
【図 1】



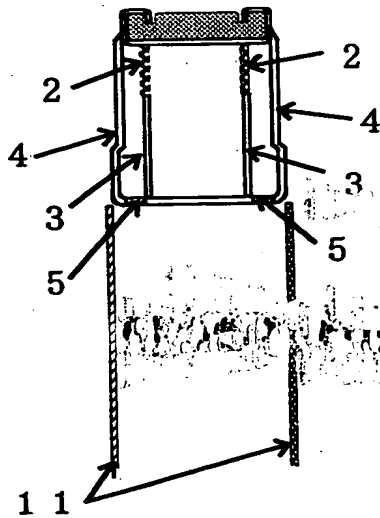
【図 2】



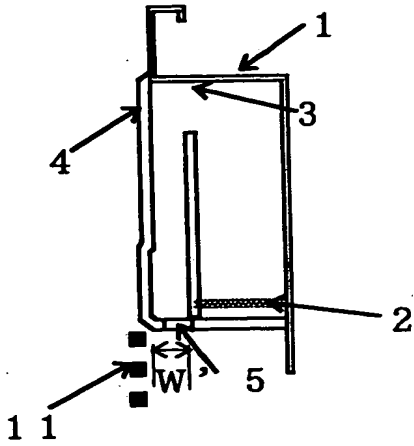
【圖 3】



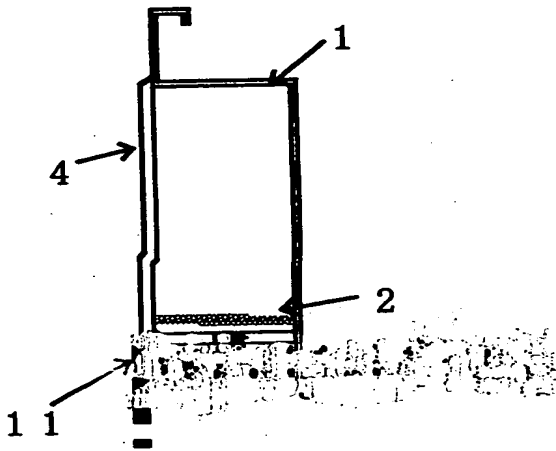
【図 4】



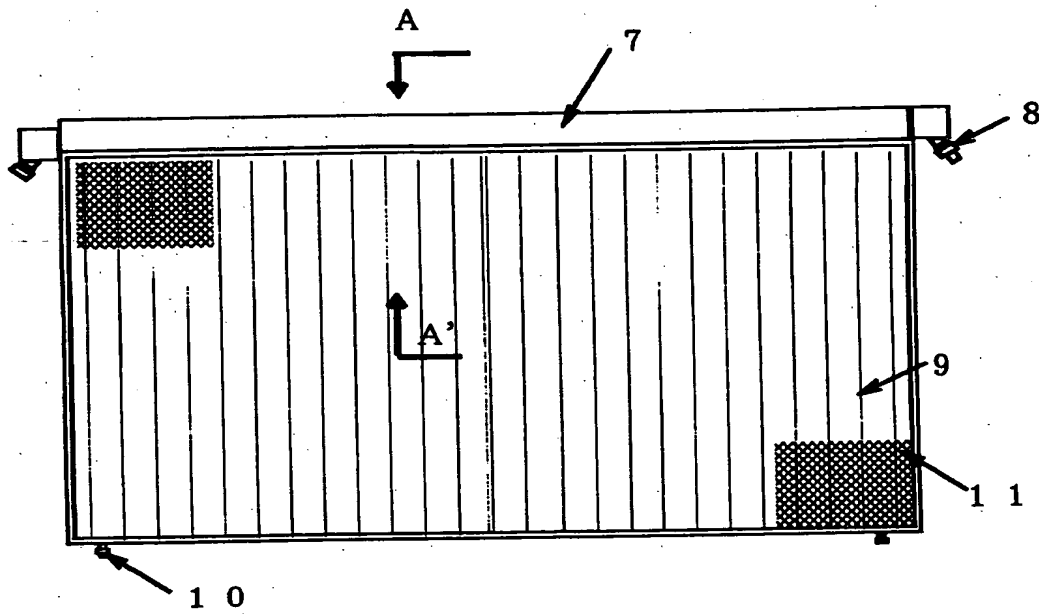
【図 5】



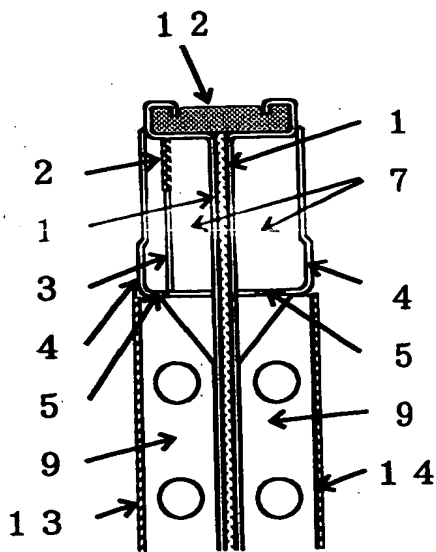
【図 6】



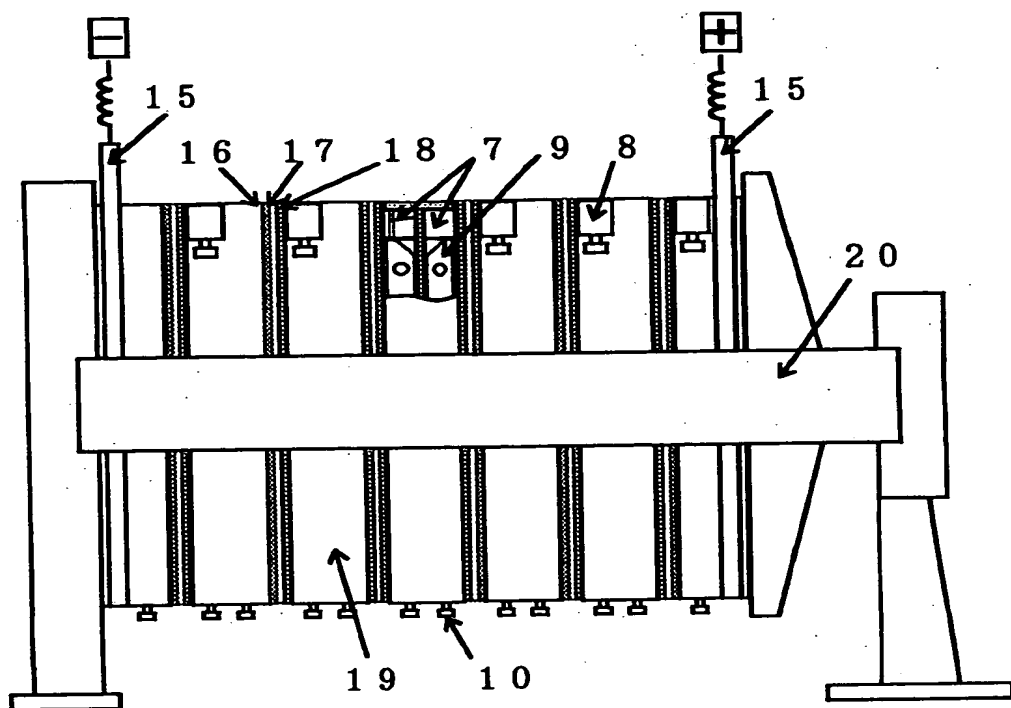
【図 7】



【図 8】



【図9】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 高電流密度においても、気泡や液、ガスが混相で払い出されずに、気液が分離した状態のまま払い出されるようにすることにより、単位電解セル内の振動を防止し、イオン交換膜の破損等が起きない単位電解セルを提供する。

【解決手段】 陽イオン交換膜を用いて塩化アルカリ水溶液を電解する単位電解セルにおいて、単位電解セル上部の非通電部に設置されている気液分離室内が、垂直に立てられた衝立状板と該衝立状板に固定された多孔質体気泡消去板より2つの通路に仕切られており、該多孔質体気泡消去板の一方の端は該衝立状板の上端または衝立状板の上部に固定されていることを特徴とする単位電解セル。

【選択図】 図2

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000000033]

1. 変更年月日 1990年 8月16日

[変更理由] 新規登録

住 所 大阪府大阪市北区堂島浜1丁目2番6号
氏 名 旭化成工業株式会社